



TITLE:

Studies on a thermal method of gas separation with porous membrane(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

Nakaye, Shoeji

CITATION:

Nakaye, Shoeji. Studies on a thermal method of gas separation with porous membrane.
京都大学, 2016, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2016-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k19686>

RIGHT:

京都大学	博士（工学）	氏名	中 江 修 二
論文題目	Studies on a thermal method of gas separation with porous membrane （多孔膜における熱を用いた気体分離に関する研究）		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>本論文は、混合気体が膜を透過する際に、ある気体成分と別の成分が互いに逆方向に透過する分子交換流が実現できることを示した上で、その流れを応用した革新的な混合気体分離法について研究した成果をまとめたものであって、5章からなっている。</p> <p>第1章では、本研究の背景および既往研究との関連性について概観し、本研究の目的と重要性について述べている。最初に、希薄気体の分野で知られている熱遷移流の概要を述べた後、近年の研究成果により、熱遷移流が大気圧下でも発生できることを説明している。次に、分子交換流が、理論的には、膜両面の圧力差により生じる透過流と熱遷移流の組み合わせによって実現可能であることを示している。従来の混合気体膜分離法では圧力差による透過速度の成分による違いだけが利用されているが、分子交換流では成分によって透過の方向が異なるため、気体膜分離の適用範囲が広がり得ることを指摘している。</p> <p>第2章では、分子交換流を誘起し、その効果を集積する装置を提案している。この装置は、熱遷移流を駆動力とする Knudsen ポンプに着想を得たもので、高分子（混合セルロースエステル）多孔膜の表側と裏側にそれぞれ流路を設けた構造である。多孔膜の表裏に温度差を与えて熱遷移流を発生し、装置の外部から与えた圧力差による透過流と組み合わせて、膜を通して分子交換流を誘起する。ここでの問題は、分子交換流によって膜の表裏に濃度差が生じると、拡散効果によって分子交換流が打ち消されることである。本論文では、膜の表裏の流路に互いに対向して気体を流すことで、膜の表裏間の濃度差の発生を防ぎ、分子交換流の効果を膜に沿う方向の濃度変化として集積する方法を提案している。</p> <p>分子交換流は、理論的に存在が予想されていた現象であるが、実験的に観測された例はなく、対向流を用いたその効果の集積も前例がない。そこで、膜を透過する流れの Boltzmann 方程式の解析結果を利用した、質量保存則に基づく簡便な数値計算法を開発し、分子交換流の効果を集積する装置の実現可能性を検討している。その結果、対向流の速さや流路の大きさが適切であれば、多孔膜に沿った方向に濃度変化が得られること、また、多孔膜を延長して濃度変化量を拡大できることを示している。分子交換流による上記の濃度変化は、目的とする成分が希少な混合気体や、高純度の混合気体においても有効に働くことも示されている。</p> <p>次に、上記数値計算の結果に基づき、孔の径が $0.1\ \mu\text{m}$ の多孔膜 ($30\times 30\text{ mm}$) の表裏に $200\ \mu\text{m}$ 程度の流路を設けた構造の装置を開発し、He-Ne および He-Ar 混合気体に対して実験を行っている。実験の結果、多孔膜に沿う方向の大きな濃度変化が測定されており、これは、本装置により実際に分子交換</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	中 江 修 二
<p>流が誘起されていることを示している．例えば，He-Ar 混合気体で 45 K の温度差を用いた場合では，多孔膜の両端で最大 15 % の濃度差が見られた．なお，多孔膜の孔径が大気圧における気体分子の平均自由行程と同程度であるため，この装置は大気圧下で稼働するものとなっている．</p> <p>第 3 章では，分子交換流を応用した混合気体分離法を考案し，その実現可能性を数値計算で検討している．提案した方法では，前章で開発した装置を複数並列に接続した構造を用いる．一部の装置には，大きな温度差を与えて Knudsen ポンプとして動作させ，分子交換流に必要な圧力差を得るとともに，対向流の駆動に利用する．残る装置には，比較的小さな温度差を与え，分子交換流を誘起して気体分離を行う．装置内部の混合気体の挙動を前章と同じ手法による数値計算によって調べ，提案した方法で混合気体が分離できることを明らかにしている．</p> <p>具体的には，全長約 15 cm の装置に最大で 90 K の温度差を与えることで，濃度が 70 % の Ne-Ar 混合気体から，ほぼ純粋な Ne と Ar を装置内部の対向流に対して 1 % の流量で連続的に生産できることが示されている．生産される気体の純度は，生産流量の増大とともに減少するが，対向流の 10 % 程度の流量においても，有意な濃度変化が得られている．</p> <p>第 4 章では，前章の提案に基づいて，装置を試作して気体分離法を実証している．Knudsen ポンプとして，第 2 章で開発した装置を基に，面積 18 cm² の多孔膜を用い，膜に 100 K の温度差を与えることが可能な装置を開発している．このポンプは，流量が無い場合では 4.2 kPa の圧力差を，圧力差が無い場合には 220 sccm の流量を発生する，前例のない大流量 Knudsen ポンプである．このポンプと第 2 章で試作した装置を組み合わせ，総面積 27 cm² の多孔膜に最大 100 K の温度差をエネルギー源として与えることにより稼働する混合気体分離装置を構成した．この装置は，第 3 章で提案した方法を，混合気体に対する Knudsen ポンプの特性を利用して，さらに簡略化した装置となっている．</p> <p>この装置に He-Ne 混合気体を供給し，気体分離の実証実験を行った．その結果，上記気体分離装置により，与えられた混合気体から，He 濃度の高い気体と Ne 濃度の高い気体を連続的に生産可能なことを示している．実験では，5 sccm の流量の混合気体に対し，二つの生成気体の間に 5.5 % の濃度差を与えることが可能であるという結果が得られている．</p> <p>第 5 章は結論であり，本論文で得られた成果についてまとめている．</p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、混合気体のある成分が他の成分と反対方向に膜を通り抜ける現象である分子交換流を実証し、当該現象を応用した革新的な混合気体分離法について研究した成果をまとめたものであり、得られた主な成果は次の通りである。

1. 温度と圧力で駆動される流れを組み合わせ、多孔膜を通り抜ける分子交換流が実際に誘起できることを世界に先駆けて実証した。この分子交換流は、理論的には存在が指摘されていたが、実験的に観測したのは本論文の結果が最初である。
2. 分子交換流の効果を集積する方法として、多孔膜の表裏に流路を設け、対向流を与える方法を提案した。集積の効果を、数値計算および実験によって実証し、分子交換流を用いて混合気体の濃度を大きく変化させる技術の基礎を確立した。数値計算では、分子交換流による上記の濃度変化が、成分が希薄あるいは高純度の混合気体においても消失せず、これらの混合気体の濃縮に有効に利用できることも示されている。これは従来の混合気体膜分離法に見られない特徴である。
3. 同一の多孔膜に、場所によって異なる温度差を与えるだけで、混合気体を連続的に分離する独創的な混合気体分離法を考案し、数値計算による検討と実験によって実現の可能性を示した。必要とされる温度差が 100 K と小さく、利用が難しい低品位の熱源を有効に活用できることは、応用上特筆すべき点である。
4. 上記の混合気体分離の実験において、前例の無い大流量 Knudsen ポンプの作製に成功した。このポンプは、面積 18 cm² の多孔膜に 100 K の温度差を与えることで、最大 220 sccm の流量で熱遷移流を誘起できる。

本論文は、専ら化学工学分野で研究されてきた混合気体分離に対し、分子気体力学の理論的成果を応用することで、従来からの手法の原理的な制約を取り除き、新しい分野を拓こうとするものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。

また、平成 28 年 1 月 21 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。